

## ⑫ 公開特許公報(A)

平4-33848

⑤Int. Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	④公開 平成4年(1992)2月5日
B 32 B 15/08	R	7148-4F	
B 29 C 47/06		7717-4F	
65/64		2126-4F	
B 32 B 15/08	J	7148-4F	
31/30		7141-4F	
// B 29 K 79:00			
B 29 L 7:00		4F	
9:00		4F	
審査請求 未請求 請求項の数 1 (全8頁)			

④発明の名称 金属箔積層フィルムの製造法

②特 願 平2-138357

②出 願 平2(1990)5月30日

⑦発明者 高 林 誠 一 郎 山口県宇部市大字小串1978番の10 宇部興産株式会社宇部ケミカル工場内

⑦発明者 今 谷 克 男 山口県宇部市大字小串1978番の10 宇部興産株式会社宇部ケミカル工場内

⑦発明者 三 井 一 昭 山口県宇部市大字小串1978番の10 宇部興産株式会社宇部ケミカル工場内

⑦出 願 人 宇 部 興 産 株 式 有 限 公 司 山口県宇部市西本町1丁目12番32号

## 明 細 書

## 3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

## 1. 発明の名称

金属箔積層フィルムの製造法

## 2. 特許請求の範囲

芳香族テトラカルボン酸類と複数個のベンゼン環を有する芳香族ジアミンとから得られた熱圧着性の芳香族ポリイミドからなる、0.2～15 $\mu$ mの厚さの薄層Bが、ビフェニルテトラカルボン酸類とフェニレンジアミン類とから得られた高耐熱性の芳香族ポリイミドからなり、多層押出ポリイミドフィルムの全体の厚さの55%以上の厚さであって6～200 $\mu$ mの厚さの基体層Aの少なくとも片側に一体に積層されている多層押出ポリイミドフィルムの前記薄層上に金属箔を重ね合わせて、その重合体を一對の熱ロール間に連続的に供給し、280℃～550℃の温度および10～5000kg/cmの熱ロール間線圧力で、連続的に熱圧着することを特徴とする金属箔積層フィルムの製造法。

この発明は、多層押出し成形法によって形成された「熱圧着性の芳香族ポリイミドの薄層が特定の耐熱性の芳香族ポリイミドの基体層の少なくとも片側に一体に積層されている多層押出ポリイミドフィルム(支持体)」と「金属箔」とを、一對の熱ロール間に供給して、特定の条件で熱圧着して、前記熱圧着性の薄層表面と金属箔の表面とで直接に一体に熱圧着されている「金属箔積層フィルム(例えば、無接着剤型の鋼張基板)」を連続的に製造する方法に係わるものである。

この発明の金属箔積層フィルムは、多層押出し成形で得られた芳香族ポリイミドフィルムからなる支持体が、極めて高い耐熱性、寸法安定性および機械的物性を有していると共に、該多層押出ポリイミドフィルムと金属箔との接合が、熱硬化性の接着剤などをまったく使用せずに、該多層押出ポリイミドフィルムにおける熱圧着性の芳香族ポリイミドの薄層と金属箔との熱圧着で接合されて

いるので、例えば、前記の金属箔積層フィルムがハンダ浴などの高温に曝されても、その接着性が十分に高いレベルで維持され、支持体フィルムが実質的に熱劣化しないのである。

〔従来技術の説明〕

従来、金属箔と耐熱性フィルム（例えば、芳香族ポリイミド）支持体とからなる複合材料（例えば、銅張基板など）は、芳香族ポリイミドフィルムと金属箔とを『エポキシ樹脂などの熱硬化性接着剤』を介して熱接着することによって積層して製造されることが、一般的であった。

しかし、前記複合材料における熱硬化した接着剤層は、適当な接着力が保持されうる常時使用温度がせいぜい200℃以下であったので、ハンダ処理などの高温に曝される加工工程、又は、高温に曝される用途では使用できないという問題があり、金属箔と耐熱性フィルムとの複合材料としてはより耐熱性のあるものが期待されていた。

その対策として、耐熱性のある接着剤の検討が種々行われているが、高い耐熱性を有する接着剤

は、積層工程が高温を必要としたり、複雑な積層工程を必要としたり、また、得られた積層体が十分な接着性を示さないことが多いなどの問題があり、実用的ではなかった。

一方、熱硬化性の接着剤などをまったく使用しないで、芳香族ポリイミドフィルム支持体に金属箔が形成されている『無接着剤型の複合材料』を製造する方法も、いくつか検討されている。

例えば、『無接着剤型の複合材料』の製法としては、芳香族ポリイミド前駆体（芳香族ポリアミック酸）の溶液を、金属箔上で流延・製膜して、複合材料を製造する方法、あるいは、芳香族ポリイミドフィルム上に金属をメッキしたり、および／または、真空蒸着したりして、複合材料を製造する方法が、提案されている。

しかし、前述の流延製膜法は、支持体層を十分に厚くすることが極めて困難であったり、あるいは、製膜工程における溶媒の蒸発・除去工程が極めて長時間となって生産性が低いという問題点があった。また、前述の金属メッキ法及び／又は金

属蒸着法は、金属箔の厚さを十分に厚くすることが困難であり、この点において生産性が低くかったのである。

さらに、最近、熱可塑性を有するポリイミドフィルムと金属箔との積層によって、積層材料を製造する方法（特開昭62-53827号公報）、および、金属箔と、二次転位温度を有する芳香族ポリイミドフィルムと、耐熱性の高い芳香族ポリイミドフィルムとを重ね合わせて、熱的に圧着することによって、積層材料を製造する方法（特開昭62-104840号公報、特公昭61-15825号公報）が提案されている。

しかし、前述の熱可塑性のポリイミド又はTgを有するポリイミドを使用して積層する方法で得られた積層材料は、支持体層が耐熱性、熱寸法安定性において低いレベルであったり、ハンダ浴中の高い温度の履歴を受けた場合の接着性（ハンダ耐熱性など）が低いという問題があった。

また、耐熱性および寸法安定性が高い芳香族ポリイミドとしては、ビフェニルテトラカルボン酸

類とフェニレンジアミン類とから得られた高耐熱性の芳香族ポリイミドが特公平2-373号公報などに提案されているが、前記の芳香族ポリイミドからなるフィルムは、前述のような公知の種々の方法などで、接着剤を用いて金属箔と接着しても、得られた積層体が、接着性、耐熱性において低いレベルであるという問題があった。

〔解決すべき問題点〕

この発明の目的は、ビフェニルテトラカルボン酸類とフェニレンジアミン類とから得られた高耐熱性の芳香族ポリイミド製のフィルムを主体とする支持体と金属箔とが、熱硬化性の接着剤をまったく使用せずに、高い接着力で一体に接着され積層されていて、芳香族ポリイミドのみからなる支持体と金属箔とからなる金属箔積層フィルムを容易に製造することができる方法を提供することである。

〔問題点を解決する手段〕

この発明は、芳香族テトラカルボン酸類と複数個のベンゼン環を有する芳香族ジアミンとから得

られた熱圧着性の芳香族ポリイミドからなる0.2～15 $\mu$ mの厚さの薄層Bが、ビフェニルテトラカルボン酸類とフェニレンジアミン類とから得られた高耐熱性の芳香族ポリイミドからなり、多層押出ポリイミドフィルムの全体の厚さの55%以上の厚さであって6～200 $\mu$ mの厚さの基体層Aの少なくとも片側に一体に積層されている多層押出ポリイミドフィルムの前記薄層上に金属箔を重ね合わせて、その重合体を一對の熱ロール間に連続的に供給し、280℃～550℃の温度及び10～5000 kg/cmの熱ロール間線圧力（長尺の多層押出フィルムの幅で熱ロール間の荷重を割った値）で、連続的に熱圧着することとを特徴とする金属箔積層フィルムの製造法に関する。

以下、この発明について、図面も参考にして、詳しく説明する。

第1図は、この発明の製造法において使用される積層用の装置の概略を示す断面図である。

第2図は、この発明の製造法で製造される多層押出ポリイミドフィルム（支持体フィルム）と金

属箔とからなる二層の金属箔積層フィルムの一例を示す断面図であり、第3図は、前記の多層押出ポリイミドフィルム（支持体フィルム）とその両側に積層された金属箔とからなる三層の金属箔積層フィルムの例を示す断面図である。

さらに、第4図および第5図は、この発明の製造法において使用される二層及び三層押出ポリイミドフィルムの例をそれぞれ示す断面図である。

この発明の製造法において使用されている多層押出ポリイミドフィルム（支持体フィルム）は、例えば、第4図及び第5図に示されているように、「(a)2,3,3',4'-又は3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸又はその酸二無水物、3,3',4,4'-ベンゾフェノンテトラカルボン酸又はその酸二無水物、3,3',4,4'-ジフェニルエーテルテトラカルボン酸又はその酸二無水物などの芳香族テトラカルボン酸類と、複数個（好ましくは2～5個）のベンゼン環を有する芳香族ジアミンとから重合及びイミド化によって得られた『熱圧着性の芳香族ポリイミド』からなり、

(b)厚さ0.2～15 $\mu$ m（好ましくは0.4～12 $\mu$ m、特に0.5～10 $\mu$ m程度）である薄層Bが、

「ビフェニルテトラカルボン酸類とフェニレンジアミン類とから得られた高耐熱性の芳香族ポリイミドからなり、多層押出ポリイミドフィルムの全体の厚さの55%以上、特に60%以上の厚さであって、その厚さが6～200 $\mu$ m（好ましくは7～180 $\mu$ m、特に10～160 $\mu$ m）の範囲内である基体層A」の少なくとも片側に、前記基体層用のドーブ液と薄層用のドーブ液との多層の共押し出し成形—溶液流延製膜法によって、一体に積層されて構成されているものである。

前記の多層押出ポリイミドフィルムは、例えば、この出願人がすでに特許出願している『特願平1-317706号の出願明細書』に記載されている方法によって製造することができる。

すなわち、前記の多層押出ポリイミドフィルムは、芳香族テトラカルボン酸類と複数個のベンゼン環を有する芳香族ジアミン類とから得られた芳香族ポリアミックス酸が均一に溶解している第一の芳

香族ポリアミックス酸溶液（薄層用のドーブ液）と、ビフェニルテトラカルボン酸類とフェニレンジアミン類とから得られた芳香族ポリアミックス酸が均一に溶解している第二の芳香族ポリアミックス酸溶液（基体層用のドーブ液）とを、二層以上の押し出し成形用ダイスを有する押し出し成形機と同時に供給して、前記ダイスの吐出口から両溶液を少なくとも二層の薄膜状体として平滑な支持体（金属製支持体）上に連続的に押し出し、そして、前記支持体上の多層の薄膜状体を乾燥し溶媒をかなり蒸発して除去して自己支持性の多層フィルム（溶媒を一部含有している）を形成し、次いで、支持体上から該多層フィルムを剥離し、最後に、該多層フィルムを高温（250～600℃）で十分に加熱処理することによって溶媒を実質的に除去すると共にポリアミックス酸をイミド化して、連続的に製造することができる。

前記の多層押出ポリイミドフィルムは、全体の厚さが6～250 $\mu$ m、特に8～200 $\mu$ m、さらに好ましくは10～150 $\mu$ m程度であって、

幅が5~200cm、特に10~150cmである長尺の多層フィルムであることが好ましい。

前記の多層押出ポリイミドフィルムは、電子顕微鏡写真で断面を観察すると、熱圧着性の第2層Bが帯状に鱗状模様をなしているように観察され、特に、高耐熱性の基体層Aと第2層Bとの境界部に沿ってはっきりとした太線状に深い鱗状模様が観察されるのである。しかし、この多層押出ポリイミドフィルムは、前記の境界部分で2層に剥離することがまったくできないのであり、各ポリイミド層が実質的に連続して一体的にそして強固に結合した「少なくとも2層の多層フィルム」を形成しているのである。

この発明の金属箔積層フィルムでは、前記の多層押出ポリイミドフィルムは、第4図に示すように、基体層Aと第2層Bとからなる2層構造のフィルムであっても、また、第5図に示すように、基体層Aとその両側の第2層B及びB'とからなる3層構造のフィルムであってもよい。

前記の3層構造のフィルムは、熱圧着性の第2層

BとB'とがほぼ同じ厚さ（第2層の厚さの比B/B'が0.8~1.2、特に0.9~1.1の範囲内）であることが、カール性が極めて小さくなるので最適である。

前記の基体層Aを形成している高耐熱性の芳香族ポリイミドは、ビフェニルテトラカルボン酸またはその酸二無水物を60モル%以上、特に80モル%以上含有する芳香族テトラカルボン酸成分と、フェニレンジアミン類を50モル%以上、特に60モル%以上含有する芳香族ジアミン成分とから、重合およびイミド化によって得られる高分子量の芳香族ポリイミド（好ましくは二次転移温度を実質的に有していない芳香族ポリイミド）であることが、耐熱性、機械的強度、寸法安定性などの点から好ましい（例えば、特公平2-373号公報、特公昭60-42817号公報などを参照）。

また、前記の第2層Bを形成している芳香族ポリイミドは、ビフェニルテトラカルボン酸類を60モル%以上、特に80モル%以上含有する芳香族

テトラカルボン酸成分と、例えば、ジフェニルエーテル系ジアミン、ジアミノジフェニルアルカン系ジアミン、ジフェニルスルホン系ジアミン、ジ（アミノフェノキシ）ベンゼン類、ジ（（アミノフェノキシ）フェニル）スルホン類などの「複数のベンゼン環を有する芳香族ジアミン」を主として含有する芳香族ジアミン成分とから、重合およびイミド化することによって得られた、二次転移温度が250~400℃、特に260~360℃である芳香族ポリイミドであることが、金属箔との熱圧着性および耐熱性が優れているので好ましい。

この発明の金属箔積層フィルムにおいて使用されている金属箔としては、鉄、アルミニウム、銅、金、銀、鉛、マグネシウムからなる群から選ばれた少なくとも一種の金属または合金からなる導電性の金属箔であればよく、特に、厚さが5~100μm、さらに好ましくは10~60μmであり、幅が5~200cmである長尺の銅箔を好適に挙げることができる。

この発明の製造法は、前述の「長尺の多層押出ポリイミドフィルム」の第2層上に、「長尺の金属箔」を、直接に（熱硬化性の接着剤などを全く使用せず）重ね合わせて、その重合体を一對の熱ロール間に供給して、280℃~550℃（好ましくは300~500℃）の圧着温度、および、10~50000kg/cm（好ましくは20~1000kg/cm程度）の熱ロール間線圧力で、連続的に熱圧着することによって行われるのである。

この発明の製造法において、熱圧着操作は、銅箔などの金属箔の熱劣化を防止するために、窒素ガス、ネオンガス、アルゴンガスなどの不活性ガスの雰囲気下、あるいは、銅箔などの金属箔上に熱劣化防止用の金属箔（例えば、ステンレス箔、アルミニウム箔など）を重ね合わせて、高温での加熱圧着をすることが好ましい。

この発明の製造法においては、例えば、第1図に示す装置を使用し、しかも、長尺の多層押出ポリイミドフィルムおよび金属箔を使用して、連続的に行うことができる。

この発明の製造法としては、第1図に示す装置を使用して、原料供給ロール7から前記の長尺の二層押出ポリイミドフィルム10（高耐熱性の基体層A及び熱圧着性の薄層Bからなり、その熱圧着性の薄層Bを上向きとして）を、エキスパンダロール1、案内ロール2など経由で、緊張状態で、一对の熱ロール3及び4（弾性ロール又は金属ロール）の間へ供給すると共に、一方、原料供給ロール6から長尺の金属箔20を、エキスパンダロール1など経由で、緊張状態で、前記一对の熱ロール間へ供給して、両者を直接に重ね合わせると共に、熱ロール3及び4で熱圧着して、一体に積層して、その積層体を必要であれば冷却して、最後に、巻き取りロール5によって、巻き取り速度1～200cm/分、特に5～100cm/分で連続的に巻き取り金属箔積層フィルムを製造することが好ましい。

また、この発明の製造法において、長尺の三層押出ポリイミドフィルムを使用する場合には、前記の第1図の装置における中央の原料供給ロール

7から前記の三層押出ポリイミドフィルム10を供給すると共に、上下の原料供給ロール6及び8から金属箔20及び20'を同時に供給して、三者を重ね合わせて熱ロール3及び4の間に供給することによって、熱圧着することができる。

この発明の製造法で得られた金属箔積層フィルムは、第2図及び第3図に示すように、前記の多層押出ポリイミドフィルム（支持体フィルム）10の薄層Bと前記の金属箔20（又は20'）とが直接に熱的に圧着されており、その接着強度（90°-剝離法）が、室温で、少なくとも0.6kg/cm、特に0.7～5kg/cm程度であり、その剝離界面は、前記薄層Bの表面と金属箔の表面との界面であり、基体層Aと薄層Bとの界面部分での剝離が実質的に全く生じないものであり、さらにハンダ浴（約288℃）に10秒間浮かべて接触させて、熱圧着面において膨れ、割れなどが生じることがない耐熱性の優れたものである。

#### （実施例）

以下、実施例および比較例を示して、この発明をさらに詳しく説明する。

実施例および比較例において、各ポリイミドフィルムについて、下記の各測定試験を行った。

引張試験は、ASTM D-882に準ずる方法で行い、引張強度、伸び率（破断点）、弾性率を測定した。

加熱収縮率は、試料フィルムを、400℃で2時間加熱し、次いで、徐々に冷却した際の寸法変化率を測定した。

線膨張係数は、400℃で熱処理した後の試料フィルムについて、50～300℃の範囲の温度において測定した。

また、実施例および比較例において、金属箔積層フィルムの接着強度は、IPC-TM-（2.4.9.）の「90°-剝離法」に従って測定し、また、その耐ハンダ性は、IPC-TM-650（2.4.13）に準拠した測定法で、288±5℃の温度に維持したハンダ浴に、試料の金属箔積層フィル

ムを、金属箔側とハンダ浴とが接触するように10秒間浮かべて、金属箔積層フィルムの膨れ、割れなどの有無を目視で判断（良否を決定）する方法で行った。

#### 実施例1

3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物（s-BPDA）と、4,4'-ジアミノジフェニルエーテル（DADE）とを、N,N-ジメチルアセトアミド（DMAc）中で重合して、ポリマー濃度18重量%、溶液粘度5000ポイズの第一の芳香族ポリアミックス酸溶液を調製した。

一方、s-BPDAと、パラフェニレンジアミン（PPD）とをDMAc中で重合して、モノマー濃度18重量%溶液粘度4500ポイズの第二の芳香族ポリアミックス酸溶液を調製した。

前記の第一及び第二の芳香族ポリアミックス酸溶液を使用して、二層押し出しダイスから、平滑な金属製支持体の上面に押し出して流延し、140℃の熱風で連続的に乾燥し、固化フィルム（自己支持性フィルム、溶媒含有率：35重量%）を形

成し、その固化フィルムを支持体から剝離した後、加熱炉で、200℃から550℃まで徐々に昇温して、溶媒を除去すると共にポリマーのイミド化を行い、長尺の二層押出ポリイミドフィルム（幅：20cm）を製造した。この二層押出ポリイミドフィルムの各物性（引張試験、加熱収縮性、線膨張係数）を第1表に示す。

前記の二層押出ポリイミドフィルムは、高耐熱性の芳香族ポリイミド（二次転移温度なし）からなる基体層Aが、厚さ32μmであり、熱圧着性の芳香族ポリイミド（二次転移温度280℃）からなる薄層Bが、厚さ3μmであった。

次いで、第1図に示す装置を使用して、原料供給ロール7から前記の長尺の二層押出ポリイミドフィルム10をその薄層Bが上方となるように、供給すると共に、一方、原料供給ロール6から長尺の35μmの銅箔20を供給して、両者をエクスパンドロール1などで重ね合わせて、続いて、熱ロール3及び4へ供給して、第1表に示す条件で熱圧着し、金属箔積層ポリイミドフィルムを製

造した。

前記の金属箔積層フィルムについて、その接着強度（90°-剝離、室温）および耐ハンダ性を測定した。その結果を第1表に示す。

#### 実施例2

熱圧着条件として、第1表に示す条件を採用したほかは、実施例1と同様にして、金属箔積層ポリイミドフィルムを製造した。

それらの金属箔積層フィルムの接着強度および耐ハンダ性を第1表に示す。

#### 実施例3

二層押出しダイスの吐出量を変化させて、第1表に示す厚さの構成（基体層Aと薄層B）の二層押出ポリイミドフィルムを製造し、それらの二層押出ポリイミドフィルムを使用したほかは、実施例2と同様にして、金属箔積層ポリイミドフィルムを製造した。それらの金属箔積層フィルムの接着強度および耐ハンダ性を第1表に示す。

#### 実施例4～7

三層押出しダイスを使用し、吐出量を変えたほ

かは、実施例1と同様にして、第2表に示す構成の三層押出ポリイミドフィルム（基体層Aの両側に熱圧着性の薄層BおよびB'を有する）を製造した。この三層押出ポリイミドフィルムの各物性（引張試験、加熱収縮性、線膨張係数）を第1表に示す。

前記の三層押出ポリイミドフィルムを原料供給ロール7から供給し、原料供給ロール6及び8から長尺の銅箔を供給し、熱圧着条件を第1表に示すようにした他は、実施例1と同様にして、各金属箔積層ポリイミドフィルムをそれぞれ製造した。

前記の各金属箔積層フィルムについて、その接着強度および耐ハンダ性を第2表に示す。

#### 比較例1～2

実施例1で調製した第一の芳香族ポリアミックス酸を使用して、一層押出しダイスを使用したほかは、実施例1と同様の成形条件で、二次転移温度280℃を有する厚さ75μmの芳香族ポリイミドフィルム（単層フィルム、R<sub>1</sub>タイプという）を製造した。それらのフィルムの物性を第1表に

示す。

前記の単層の芳香族ポリイミドフィルムを使用し、第1表に示す熱圧着条件としたほかは、実施例1と同様にして、金属箔積層ポリイミドフィルムを製造した。その金属箔積層フィルムの接着強度および耐ハンダ性を第1表に示す。

#### 比較例3

実施例1で調製した第一の芳香族ポリアミックス酸を使用して、一層押出しダイスを使用したほかは、実施例1と同様の成形条件で、二次転移温度285℃を有する厚さ15μmの芳香族ポリイミドフィルム（単層フィルム、R<sub>2</sub>タイプという）を製造した。

実施例1で調製した第二の芳香族ポリアミックス酸を使用して、一層押出しダイスを使用したほかは、実施例1と同様の成形条件で、二次転移温度を有していない厚さ60μmの芳香族ポリイミドフィルム（単層フィルム、S<sub>1</sub>タイプという）を製造した。

前述の原料供給ロール8からS<sub>1</sub>タイプの単層

フィルムを供給し、原料供給ロール7からR<sub>2</sub>タイプの単層フィルムを供給すると共に、原料供給ロール6から長尺の銅箔を供給し、第1表に示す熱圧着条件としたほかは、実施例1と同様にして金属箔積層ポリイミドフィルムをそれぞれ製造した。その金属箔積層フィルムの接着強度および耐ハンダ性を第1表に示す。

第 1 表

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	比較例1	比較例2	比較例3
フィルムの種類	二層	二層	二層	三層	三層	三層	三層	単層 (R <sub>1</sub> )	単層 (R <sub>1</sub> )	単層 (S <sub>1</sub> ) 単層 (R <sub>2</sub> )
フィルムの幅 cm	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20 20
多層押出フィルムなどの厚さ										
全体 $\mu\text{m}$	35.0	35.0	25.0	25.0	75.0	75.0	75.0	75.0	75.0	60.0 15.0
基体層A $\mu\text{m}$	32.0	32.0	24.0	15.0	55.0	55.0	55.0	---	---	---
銅層B $\mu\text{m}$	3.0	3.0	1.0	5.0	10.0	10.0	10.0	---	---	---
銅層B' $\mu\text{m}$	---	---	---	5.0	10.0	10.0	10.0	---	---	---
フィルム物性										
引張強度 $\text{kg}/\text{mm}^2$	45.9	45.9	41.5	25.0	29.0	29.0	29.0	32.1	32.1	---
伸び率 %	4.1	4.1	3.9	3.2	3.4	3.4	3.4	12.9	12.9	---
弾性率 $\text{kg}/\text{mm}^2$	830	830	870	608	667	667	667	370	370	---
加熱収縮率 (TD方向) %	0.30	0.30	0.28	0.65	0.52	0.52	0.52	2.10	2.10	---
線膨張係数 (TD方向) ( $\times 10^{-5} \text{cm}/\text{cm}/^\circ\text{C}$ )	1.3	1.3	1.0	2.1	1.7	1.7	1.7	4.0	4.0	---
金属箔 種類	銅箔 (Cu)	銅箔	銅箔	銅箔	銅箔	銅箔	銅箔	銅箔	銅箔	銅箔
厚さ $\mu\text{m}$	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35
使用枚数	1	1	1	2	2	2	2	1	1	1
金属箔積層フィルムの積層条件	二層-Cu	二層-Cu	二層-Cu	Cu-三層-Cu	Cu-三層-Cu	Cu-三層-Cu	Cu-三層-Cu	Cu-R <sub>1</sub> -Cu	Cu-R <sub>1</sub> -Cu	S <sub>1</sub> -R <sub>2</sub> -Cu
重ね合わせ順										
圧着温度 上部熱ロール $^\circ\text{C}$	380	350	350	380	380	350	300	420	380	350
圧着温度 下部熱ロール $^\circ\text{C}$	380	350	350	380	380	350	300	420	380	350
熱ロール信頼圧力 $\text{kg}/\text{cm}^2$	150	150	150	200	350	350	350	200	200	200
引き取り速度 $\text{cm}/\text{分}$	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
金属箔積層フィルムの性状										
接着強度 上部 $\text{kg}/\text{cm}$	2.0	1.0	0.7	3.3	3.7	2.5	0.6	3.6	3.5	1.2
接着強度 下部 $\text{kg}/\text{cm}$	---	---	---	2.8	2.5	2.5	0.8	3.1	3.8	---
耐ハンダ性	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	膨れあり	膨れあり	膨れあり

## 〔本発明の作用効果〕

この発明の金属箔積層フィルムの製造法は、優れた金属箔積層フィルムを、容易に再現性よく製造することができる方法である。

前記の金属箔積層フィルムは、その支持体である『多層押出ポリイミドフィルム』が、その『基体層』を高耐熱性の特定の芳香族ポリイミドで形成されていると共に、その少なくとも片面に熱圧着性を有する特定の芳香族ポリイミドからなる

『薄層』を有しているものである。支持体が極めて優れた耐熱性、機械物性、電気的特性を有していると共に、また、その金属箔積層フィルムの金属箔と多層押出ポリイミドフィルムとの間の接着性が強固であり、極めて耐熱性に優れており、特に耐ハンダ性が高い優れたものである。

## 4. 図面の簡単な説明

第1図は、この発明の製造法において使用される積層用の装置の概略を示す断面図である。

第2図は、この発明の製造法で製造される多層

押出ポリイミドフィルム（支持体フィルム）と金属箔とからなる二層の金属箔積層フィルムの一例を示す断面図であり、第3図は、前記の多層押出ポリイミドフィルム（支持体フィルム）とその両側に積層された金属箔とからなる三層の金属箔積層フィルムの例を示す断面図である。

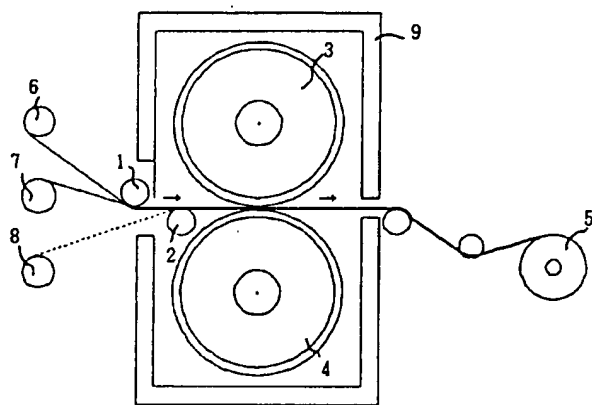
さらに、第4図および第5図は、この発明の製造法において使用される二層及び三層押出ポリイミドフィルムの例をそれぞれ示す断面図である。

A；基体層、B及びB'；薄層

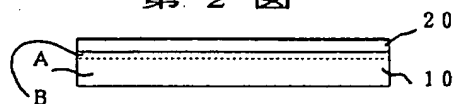
1および2；エクスパンドロール、3および4；熱ロール、5；巻き取りロール、6、7および8；原料供給ロール、9；加熱炉、10；多層押出フィルム、20；金属箔。

特許出願人 宇部興産株式会社

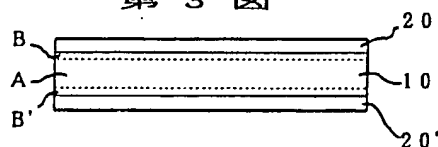
第1図



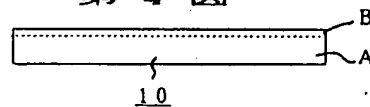
第2図



第3図



第4図



第5図

